

PATENT COOPERATION TREATY

10/088,515

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

COMMUNICATION OF
INTERNATIONAL APPLICATIONS
(PCT Article 20)

Date of mailing:

01 March 2002 (01.03.02)

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202
ETATS-UNIS D'AMERIQUE
in its capacity as designated Office

The International Bureau transmits herewith copies of the international applications having the following international application numbers and international publication numbers:

International application no.:

PCT/JP01/06964

International publication no.:

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer:

J. Zahra
Telephone No.: (41-22) 338.83.38

記録原本

1/5

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出願用) - 印刷日時 2001年08月10日 (10.08.2001) 金曜日 16時48分04秒

F1010416W000

0	受理官庁記入欄 国際出願番号	PCT/JP01/06964
0-2	国際出願日	13.08.01
0-3	(受付印)	PCT International Application 日本国特許庁
0-4	様式-PCT/R0/101 この特許協力条約に基づく国際出願願書は、右記によって作成された。	PCT-EASY Version 2.92 (updated 01.03.2001)
0-5	申立て 出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されることを請求する。	
0-6	出願人によって指定された受理官庁	日本国特許庁 (R0/JP)
0-7	出願人又は代理人の書類記号	F1010416W000
I	発明の名称	安定して優れた特性で発電できる燃料電池
II	出願人 II-1 この欄に記載した者は II-2 右の指定国についての出願人である。 II-4ja 氏名(姓名) II-4en Name (LAST, First) II-5ja あて名: II-5en Address: II-6 国籍(国名) II-7 住所(国名)	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) すべての指定国 (all designated States) 株本 浩輝 挿 KABUMOTO, Hiroki 06278 アメリカ合衆国 コネチカット州 アッシュフォード市 ヴァルガロード 69、マーレアパークス アパート 115 115 Mar-Lea Parks Apt., 69 Varga Rd., Ashford, CT 06278 United States of America 日本国 JP アメリカ合衆国 US
III-1	その他の出願人又は発明者 III-1-1 この欄に記載した者は III-1-2 右の指定国についての出願人である。 III-1-4ja 氏名(姓名) III-1-4en Name (LAST, First) III-1-5ja あて名: III-1-5en Address: III-1-6 国籍(国名) III-1-7 住所(国名)	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) すべての指定国 (all designated States) 近野 義人 CHIKANO, Yoshito 370-0532 日本国 群馬県邑楽郡大泉町坂田 6-6-3-1E 6-6-3-1E, Sakata, Oizumi-Machi Oura-gun, Gunma 370-0532 Japan 日本国 JP 日本国 JP

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本（出願用） - 印刷日時 2001年08月10日 (10.08.2001) 金曜日 16時48分04秒

F1010416W000

III-2 III-2-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) すべての指定国 (all designated states) 米津 育郎 YONEZU, Ikuo 573-0084 日本国 大阪府 枚方市香里ヶ丘 8-16-9 8-16-9, Kourigaoka, Hirakata-shi, Osaka 573-0084 Japan 日本国 JP
III-2-2 III-2-4j a III-2-4e n III-2-5j a	右の指定国についての出願人である。 氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	米津 育郎 YONEZU, Ikuo 573-0084 日本国 大阪府 枚方市香里ヶ丘 8-16-9 8-16-9, Kourigaoka, Hirakata-shi, Osaka 573-0084 Japan 日本国 JP
III-2-5e n	Address:	日本国 JP
III-2-6 III-2-7	国籍 (国名) 住所 (国名)	日本国 JP
III-3 III-3-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) すべての指定国 (all designated states) 磯野 隆博 ISONO, Takahiro 573-0026 日本国 大阪府 枚方市 朝日丘、10-34-203 10-34-203, Asahigaoka Hirakata-shi, Osaka 573-0026 Japan 日本国 JP
III-3-2 III-3-4j a III-3-4e n III-3-5j a	右の指定国についての出願人である。 氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	磯野 隆博 ISONO, Takahiro 573-0026 日本国 大阪府 枚方市 朝日丘、10-34-203 10-34-203, Asahigaoka Hirakata-shi, Osaka 573-0026 Japan 日本国 JP
III-3-5e n	Address:	日本国 JP
III-3-6 III-3-7	国籍 (国名) 住所 (国名)	日本国 JP
III-4 III-4-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only) すべての指定国 (all designated states) 安尾 耕司 YASUO, Takashi 326-0067 日本国 栃木県 足利市江川町 3-3-2-102 3-3-2-102, Egawa-cho Ashikaga-shi, Tochigi 326-0067 Japan 日本国 JP
III-4-2 III-4-4j a III-4-4e n III-4-5j a	右の指定国についての出願人である。 氏名(姓名) Name (LAST, First) あて名:	安尾 耕司 YASUO, Takashi 326-0067 日本国 栃木県 足利市江川町 3-3-2-102 3-3-2-102, Egawa-cho Ashikaga-shi, Tochigi 326-0067 Japan 日本国 JP
III-4-5e n	Address: 3-3-2-102	日本国 JP
III-4-6 III-4-7	国籍 (国名) 住所 (国名)	日本国 JP

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本（出願用） - 印刷日時 2001年08月10日 (10.08.2001) 金曜日 16時48分04秒

IV-1	代理人又は共通の代表者、通知のあて名 下記の者は国際機関において右記のごとく出願人のために行動する。 氏名(姓名) Name (LAST, First)	代理人 (agent) 中島 司朗 NAKAJIMA, Shiro 531-0072 日本国 大阪府 大阪市 北区豊崎三丁目2番1号淀川5番館 6F 6F, Yodogawa 5-Bankan, 2-1, Toyosaki 3-chome, Kita-ku, Osaka-shi, Osaka 531-0072 Japan 06-6373-3246 06-6373-3105 npa@npa.gr.jp
IV-1-2en	あて名: Address:	
IV-1-3	電話番号	
IV-1-4	ファクシミリ番号	
IV-1-5	電子メール	
V	国の指定	
V-1	広域特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には括弧内に記載する。)	--
V-2	国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には括弧内に記載する。)	US
V-5	指定の確認の宣言 出願人は、上記の指定に加えて、規則4.9(b)の規定に基づき、特許協力条約のもとで認められる他の全ての国の指定を行う。ただし、V-6欄に示した国の指定を除く。出願人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされることを宣言する。	
V-6	指定の確認から除かれる国	なし (NONE)
VI-1	先の国内出願に基づく優先権主張 出願日	2000年08月11日 (11.08.2000)
VI-1-2	出願番号	特願2000-244960
VI-1-3	国名	日本国 JP
VI-2	先の国内出願に基づく優先権主張 出願日	2000年10月23日 (23.10.2000)
VI-2-2	出願番号	特願2000-322568
VI-2-3	国名	日本国 JP

VI-3	優先権証明書送付の請求 上記の先の出願のうち、右記の番号のものについては、出願書類の認証謄本を作成し国際事務局へ送付することを、受理官庁に対して請求している。	VI-1, VI-2
VII-1	特定された国際調査機関(ISA))	日本国特許庁 (ISA/JP)
VIII	申立て	申立て数
VIII-1	発明者の特定に関する申立て	-
VIII-2	出願し及び特許を与えられる国際出願日における出願人の資格に関する申立て	-
VIII-3	先の出願の優先権を主張する国際出願日における出願人の資格に関する申立て	-
VIII-4	発明者である旨の申立て (米国を指定国とする場合)	-
VIII-5	不利にならない開示又は新規性喪失の例外に関する申立て	-
IX	照合欄	用紙の枚数
IX-1	願書（申立てを含む）	5
IX-2	明細書	34
IX-3	請求の範囲	5
IX-4	要約	1
IX-5	図面	11
IX-7	合計	56
IX-8	添付書類	添付
IX-17	手数料計算用紙	✓
IX-18	PCT-EASYディスク	-
IX-18	その他	納付する手数料に相当する特許印紙を貼付した書面
IX-19	要約書とともに提示する図の番号	3
IX-20	国際出願の使用言語名:	日本語
X-1	提出者の記名押印	
X-1-1	氏名(姓名)	中島 司朗

受理官庁記入欄

10-1	国際出願として提出された書類の実際の受理の日	13.08.01
10-2	図面： 受理された 不足図面がある	
10-3	国際出願として提出された書類を補完する書類又は図面であってその後期間内に提出されたものの実際の受理の日(訂正日)	
10-4	特許協力条約第11条(2)に基づく必要な補完の期間内の受理の日	
10-5	出願人により特定された国際調査機関	ISA/JP

特許協力条約に基づく国際出願願書

原本（出願用） - 印刷日時 2001年08月10日 (10.08.2001) 金曜日 16時48分04秒

10-6	調査手数料未払いにつき、国際調査機関に調査用写しを送付していない
------	----------------------------------

国際事務局記入欄

11-1	記録原本の受理の日	27 AUG 2001	27.08.01
------	-----------	-------------	----------

明細書

安定して優れた特性で発電できる燃料電池

技術分野

5 本発明は、電解質膜に固体高分子膜を用いた燃料電池に関する。

背景技術

10 燃料電池としてはリン酸型、炭酸溶融塩型など電解質の種類によって様々なものがあるが、近年では、陽イオン交換型の固体高分子膜 (proton exchange membrane) を電解質膜とし、比較的運転温度が低温で且つ高性能で発電することができる燃料電池が積極的に開発されている。

15 このタイプの燃料電池は、固体高分子膜の一方の面にカソード、他方の面にアノードを配してなるセルを、ガス流路及び当該流路間にリブが形成された一対のプレートで挟持した基本構造を持ち、実用的な燃料電池においては、このようなセルユニットが多数積層されて高出力が得られるようになっている。

20 そして、カソード及びアノードの各々は一般的に、固体高分子膜上に形成された電極触媒層とその上を覆って設けられたガス拡散層とから構成されており、このガス拡散層は、電極触媒層とガス流路との間に介在することによって、流路を流通するガスを電極触媒層に行き渡らせると共に、電極触媒層とプレートのリブとの間で導電性を確保する働きをなす。

25 また、固体高分子膜や電極触媒層は、乾燥状態ではイオン伝導性が低いので、一般的には燃料ガスや酸化剤ガスを加湿してから燃料電池に供給することによって、固体高分子膜を湿潤させながら運転する方法がとられているが、近年、燃料電池システムのコンパクト化が要求されるのに伴って、酸化剤ガスとして空気を無加湿で供給

するタイプも出てきている。

ところで、このタイプの燃料電池を高性能で発電させるためには、固体高分子膜や電極触媒層を全体的に均一に湿潤させることが望ましい。それは、固体高分子膜や電極触媒層の湿潤度が領域毎にばらついて湿潤不足もしくは湿潤過剰となる領域が生じると、湿潤不足の領域ではイオン導電性が悪くなり、湿潤過剰の領域では電極触媒層におけるガス拡散性が悪くなるため、優れた発電性能が得られないからである。

しかし、実際には、酸化剤ガスの導入口付近（空気入口側）の領域においては、出口側領域と比べて酸化剤ガス中に水分が蒸発しやすいので、固体高分子膜や電極触媒層が湿潤不足となりやすい傾向がある。

また、酸化剤ガス流路に対向する領域では、リブに対向する領域と比べて酸化剤ガス中に水分が蒸発しやすいため、固体高分子膜や電極触媒層が湿潤不足となりやすい傾向もある。

このため、無加湿の酸化剤ガス（空気）を供給して発電する燃料電池の場合には、固体高分子膜及び電極触媒層の湿潤性は不均一となりやすい。

このような問題に対して、例えば、特開平11-154523号公報には、カソードのガス拡散層および／またはアノードのガス拡散層のガス供給口側に近い部分が、ガス排出口側に近い部分よりも、ガス透過度が小さくなるように構成した固体高分子電解質型燃料電池の単セルが提案されている。

この技術によれば、例えば図11（a）、（b）に示すように、固体高分子膜401にカソード410及びアノード420が配されたセル400において、カソード410に沿って酸化剤ガス（白矢印431）が流れ、アノード420に沿って燃料ガス（白矢印432）が流れることによって発電するようになっているが、上記カソード

410において、ガス供給口側に近い領域411のガス拡散層が、ガス排出口側に近い領域412のガス拡散層よりも、ガス拡散性が小さく調整されている。

ガス拡散性の調整は、具体的には、ガス拡散層の厚さや気孔率を変えることによってなされている。即ち、入口部411では、ガス拡散層の気孔率を小さくしたり、厚さを大きくしてガス拡散性を小さくし、出口部412では、気孔率を大きくしたり、厚さを小さくすることによって、ガス拡散性を大きくしている。

この技術によれば、酸化剤ガス入口側における固体高分子膜401の乾燥を抑えて、酸化剤ガス入口側と出口側とで湿潤性を均一化することが可能と考えられるが、酸化剤ガス流路に対向する領域とリブに対向する領域とで湿潤性が不均一となる問題は残るので、燃料電池の性能を向上させるためには、この点を改良することが望まれる。

また、上記のようにガス拡散性を領域毎に調整する手法を用いた場合、酸化剤がカソード全体に均一的に行き渡りにくくなるので、電極反応における濃度分極が大きくなることによって出力低下する可能性もある。

20 発明の開示

本発明は、固体高分子膜にアノード及びカソードを配してなるセルを備えた燃料電池において、固体高分子膜及び電極触媒層の湿潤性を均一化することによって、安定して優れた特性で発電できるものを提供することを目的とする。

そのために、固体高分子膜にアノード及びカソードを配してなるセルを備えた燃料電池において、カソード触媒層とカソード側プレートとの間に介挿されるガス拡散層及びカソード触媒層の少なくとも一方を、酸化剤流路と対向する領域で、リブと対向する領域と比

べて保水性が高くなるように構成した。

ここで、「層の保水性」というのは、層の単位体積あたりに保持することのできる水分量を指すものであって、この水分量が大きいほど層の保水性が高いことになる。

5 このようにして、カソード側ガス拡散層やカソード触媒層の保水性を調整すれば、固体高分子膜及び電極触媒層が、酸化剤ガス流路に対向する領域においてリブに対向する領域よりも乾燥しやすいという傾向を抑え、これらをより均一的に保湿することができる。

10 ここで、少なくとも酸化剤入口側の領域においては、ガス拡散層の保水性を調整することが効果的である。これは、酸化剤入口側の領域においては、酸化剤ガス中の水分量が少なく、酸化剤ガス中に水分が放散しやすいため、酸化剤流路と対向する領域とリブと対向する領域とで固体高分子膜及び電極層の湿潤が不均一になりやすいうからである。

15 また、湿潤性を均一化する効果を得るためにには、ガス拡散層において、酸化剤の入口側端部から出口側に向かう一定割合（好ましくはガス拡散層における酸化剤の入口側端部から出口側端部までの全領域の面積に対して10%～90%の範囲の領域に上記のような保水性調整を行うことが好ましい。

20 このようなガス拡散層における保水性の調整は、ガス拡散層を撥水性材料が含有された導電性基材で形成し、酸化剤流路と対向する領域では、リブと対向する領域と比べて撥水性材料の含有量を小さく設定することによって行うことができる。

25 或は、ガス拡散層に、カーボン粉末と撥水性材料とを含む混合物を充填して保水性調整層を形成し、この保水性調整層の保水性を調整することによって行うこともできる。

例えば、酸化剤流路と対向する領域では、リブと対向する領域と比べて、保水性調整材中のカーボン粉末の保水性が高いもの（比表

面積の大きいもの）を用いることによって行うこともできる。

また、上記のようにカソード側ガス拡散層やカソード触媒層に対する保水性を調整するために、カソード触媒層と第2プレートとの間に、第2プレート側にガス拡散層、カソード触媒層側にイオン交換体を含有する中間保水層を介挿させ、この中間保水層において、酸化剤流路と対向する領域で、リブと対向する領域と比べて保水性が高くなるよう調整してもよい。

なお、上記のようにガス拡散層やカソード触媒層に保水性調整を施したり、中間保水層を設けても、当該層の全体領域においてガス拡散性を確保し、電極全体に均一的に酸化剤を行き渡させることは可能である。

よって、本発明によれば、固体高分子膜及び電極触媒層の全体領域にわたって湿潤性とガス拡散性を確保することができるので、高性能で燃料電池を発電させることができる。

特に無加湿の酸化剤ガス（空気）をカソードに供給して発電する燃料電池の場合には、本発明を適用することによって得られる効果も大きい。

図面の簡単な説明

図1は、実施の形態1にかかる固体高分子型燃料電池を構成するセルユニットの組立図である。

図2は、実施の形態にかかる燃料電池スタックの構成を示す図である。

図3は、実施の形態1にかかるセルユニットの構成を示す断面模式図である。

図4は、実施例1にかかる各セルのセル電圧測定値を示す特性図である。

図5は、実施の形態2にかかるセルユニットの構成を示す断面模式図である。

式図である。

図 6 は、実施例 2 にかかる各セルのセル電圧測定値を示す特性図である。

図 7 は、実施例 3 にかかる各セルのセル電圧測定値を示す特性図である。

図 8 は、実施の形態 4 にかかるセルユニットの構成を示す断面模式図である。

図 9 は、実施例 4 の比較例にかかる各セルのセル電圧測定値を示す特性図である。

図 10 は、実施の形態 5 にかかる燃料電池のセルユニット構成を示す断面模式図である。

図 11 は、従来技術にかかる燃料電池の一例を示す図である。

発明を実施するための最良の形態

〔実施の形態 1〕

まず、固体高分子型燃料電池の基本構成を説明し、次にセル構成について詳細に説明する。

〈燃料電池システム全体の構成と動作〉

図 1 は、本実施の形態 1 の固体高分子型燃料電池を構成するセルユニット 10 の組立図である。

本図に示すように、セルユニット 10 は全体として、電極／高分子膜接合体 (membrane/electrode assembly) 20 を、カソード側セパレータ板 60 とアノード側セパレータ板 50 とで挟持して構成されている。

電極／高分子膜接合体 20 は、固体高分子膜 21 の片面にカソード、他面にアノードが配されて構成されている。

カソードは、固体高分子膜 21 上に形成されたカソード触媒層 22 とその上に配されたガス拡散層 24 からなり、アノードは、固体

高分子膜 21 上に形成されたアノード触媒層 23 とその上に配されたガス拡散層 25 とからなる。

従って、カソード触媒層 22 とカソード側セパレータ板 60 の間にガス拡散層 24 が、アノード触媒層 23 とアノード側セパレータ板 50 との間に、ガス拡散層 25 が、それぞれ介挿されていることになる。

固体高分子膜 21 は、パーフルオロカーボンスルホン酸からなる薄膜状の電解質である。

カソード触媒層 22 及びアノード触媒層 23 は、白金系触媒を担持したカーボン粉末にイオン交換体 (Nafion: Du Pont 社製、以下同様) 及び撥水性樹脂が添加されたものからなる膜であり、固体高分子膜 21 の正面中央部にそれぞれホットプレスにより密着加工されている。白金系触媒としては、Pt触媒やPt-Ru触媒が用いられる。Pt触媒は燃料ガスに純水素を用いる場合に良好な触媒作用を呈するが、燃料ガス中に一酸化炭素COが含まれると被毒し、触媒作用が低下することもあるが、Pt-Ruは比較的COに被毒されにくい。

なお図1において、アノード触媒層 23 は固体高分子膜 21 の下面側にあるので破線で表示している。

ガス拡散層 24、25 は、集電体とも称され、導電性を有するガス透過性の材料から成る層であって、カーボンペーパーをはじめとする導電性多孔質材料に、ガスの拡散性を確保するため撥水性材料が添加されて形成されている。ここでは、カーボンペーパーに、撥水性材料としてフッ素樹脂を含浸したものを用いることとするが、撥水処理を施したカーボンペーパーにカーボン粒子を充填したものを用いることもできる。

アノード側セパレータ板 50 はフェノール樹脂にカーボン粉末を混合したものを射出成形してなる部材であって、ガス拡散層 25 と

対向する面（図1で下面）において、図面y方向に沿って燃料ガス（水素リッチな改質ガス）を流通させるチャネル55が形成されると共に、チャネル55どうしの間にリブ56が形成されている。

カソード側セパレータ板60はアノード側セパレータ板50とほぼ同様の部材であり、当図からは見えないが、図面y方向に沿って酸化剤ガス（空気、図中白抜き矢印A）を流通させる酸化剤チャネル65及びリブ66（図3参照）が形成されている。

更に、固体高分子膜21、ガスケット30、40、アノード側セパレータ板50、カソード側セパレータ板60にはその四隅に開孔部61～64、41～44、211～214、31～34、51～54（44、214、34、54は不図示）が設けてある。

このうち開孔部53、33、213、43、63は、アノード側セパレータ板50のチャネル55に燃料ガスを供給するマニホールド、開孔部51、31、211、41、61は、燃料ガスを排出するマニホールドを形成するものである。一方、開孔部54、34、214、44、64は、カソード側セパレータ板60のチャネルに酸化剤ガスを供給するマニホールド、開孔部52、32、212、42、62は、酸化剤ガスを排出するマニホールドを形成するものである。

なお、このような構成を有するセルユニット10は、図2に示すように、実際には高電圧・高電力が取り出せるように、多数積層され、集電板70、電気絶縁と熱絶縁を目的とする絶縁板71ならびに荷重を加えて積層状態を保持するための締付板72によって挟持し、ボルト73とナット74により締め付けられて燃料電池スタックが形成されている。なお、締め付け荷重は、皿バネ75により加えられている。

このような燃料電池において、その運転時には、燃料ガス及び空気の一方または両方が、加湿されてから各チャネルに供給され、以

下のように発電に用いられる。

チャネル 55 に供給される燃料ガスは、ガス拡散層 25 を介して、アノード触媒層 23 に供給される。そして、アノード触媒層 23 において燃料ガス中の水素はイオン化して電子を放出する ($H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$)。このとき生成されるプロトンは、固体高分子膜 21 中をカソード触媒層 22 側へ移動する。なお、このプロトンの移動に伴って、アノード触媒層 23 の水分もカソード側に移動する。

一方、空気は、ガス拡散層 24 を介してカソード触媒層 22 側に供給される。ガス拡散層 24 において、空気中の酸素は、固体高分子膜 21 中を移動して来るプロトンと結合して水を生成する ($1/2O_2 + 2e^- + 2H^+ \rightarrow H_2O$)。そして、電極／高分子膜接合体 20 (特に固体高分子膜 21 やカソード触媒層 22) は、上記の加湿水及び生成水によって湿潤されるが、電極／高分子膜接合体 20 (特に固体高分子膜 21 やカソード触媒層 22) からは酸化剤チャネル 65 を流れる空気中に水分が放散される。

＜セル構成についての詳細説明＞

次に、電極／高分子膜接合体 20 の詳細な構成並びに作用について説明する。

カソード触媒層 22 とカソード側セパレータ板 60 とに挟まれたガス拡散層 24 において、酸化剤ガス (空気) の入口側 (開孔部 64 側) から一定の範囲 (図中 20A) では、酸化剤チャネル 65 と対向する領域 (チャネル対向部 24A) では、リブ 66 と対向する領域 (リブ対向部 24B) と比べて保水性が高くなるように調整されている。

このガス拡散層 24 における保水性の調整は、具体的には、チャネル対向部 24A における単位面積当たりの撥水性材料の含有量を、リブ対向部 24B における単位面積当たりの撥水性材料の含有量より小さく設定することによって行う。

ここで、チャネル対向部 24A における単位面積当たりの撥水性材料の含有量 X_a と、リブ対向部 24B における単位面積当たりの撥水性材料の含有量 X_b との比率については、 X_a / X_b が 0.2 以上 0.9 以下となるように設定することが好ましい。その根拠については実施例 1 で後述する。

図 3 は、上記空気入口側の範囲 20A において、セルユニット 10 を厚み方向（図 1 における $x z$ 平面）で切断した断面を模式的に示す図である。

このようにガス拡散層 24 における保水性を調整することによって、以下のような効果を奏する。

チャネル対向部 24A では、空気がその表面に沿って流通するため、図 3 中に水分蒸発力をグラフで示しているように、リブ対向部 24B と比べて水分が空気中に蒸発しやすい状態にある。特に、空気入口側の範囲 20A においては、出口側の範囲 20B と比べて、酸化剤チャネル 65 を流通する空気が乾燥しているので、チャネル対向部 24A における水分が蒸発しやすい傾向が大きい。なお、酸化剤チャネル 65 に無加湿の空気が供給される場合にはこの傾向は特に顕著なものとなる。

これに対して、本セルユニット 10 では、空気入口側の領域 20A において、ガス拡散層 24 は、チャネル対向部 24A でリブ対向部 24B よりも保水性が高くなるように設定されているので、図 3 中に白抜き矢印に示すように、ガス拡散層 24 において、リブ対向部 24B からチャネル対向部 24A の方へ水分が移動する力が働く。これによって、リブ対向部 24B からチャネル対向部 24A に水分が補給されることになる。

従って、酸化剤チャネル 65 に対向する部分で固体高分子膜やカソード触媒層が乾燥しやすいという傾向は抑えられ、電極／高分子膜接合体 20 における酸化剤チャネル 65 に対向する部分とリブ 6

6と対向する部分との間で湿潤性が均一化されることになる。

ところで、一般的に酸化剤チャネル65を流通する空気は、空気入口側の領域20Aを通過して出口側の範囲20Bに到るときには水分含有量がかなり大きくなっているので、出口側の範囲20Bでは、チャネル対向部24Aとリブ対向部24Bとの水分蒸発力の差は小さい。従って、空気出口側の領域20Bでも、空気入口側の領域Aと同様に保水性の調整を施すと、逆に、チャネル対向部24Aの方がリブ対向部24Bよりも湿潤となる可能性もある。

この点を考慮すると、湿潤性の均一化を図るために、上述のように空気入口側の領域20Aだけにガス拡散層24に保水性調整を施すのが好ましいと考えられる。そして、保水性の調整を施す空気入口側の領域20Aの面積は、ガス拡散層24の全体面積に対して10%以上90%以下の範囲内に設定することが好ましい。

但し、無加湿の空気を供給する場合など、酸化剤チャネル65を流通する空気が出口付近でもかなり乾燥している場合もある。そのような場合は、ガス拡散層24の全体面積に対して保水性の調整することが好ましいと考えられる。

なお、ガス拡散層24において、上記のように保水性を領域ごとに調整しても、ガス拡散性はあまり影響を受けないので、ガス拡散層24の反応領域全体においてガス拡散性の均一性を保つことが可能である。従って、安定性よく優れたセル電圧で発電することが可能となる。

〔実施例1〕

上記実施の形態1に基づき、以下の仕様で実施例のセル1～5(単セル)を作製すると共に、比較例としてセル6、7を作製し、セル電圧測定試験を行った。

【表1】

	ガス拡散層中PTFE含有量		PTFE含有量の比率 Xa/Xb
	チャネル 対向部Xa	リブ対向部 Xb	
5	セル1	4	30
	セル2	6	30
	セル3	10	30
	セル4	17	30
10	セル5	25	30
	セル6	30	30
	セル7	40	30

15 固体高分子膜：パーフルオロカーボンスルホン酸膜（Nafion 1 1
2膜、12 cm × 12 cm、厚さ50 μm）

20 カソード触媒層22及びアノード触媒層23：10 cm × 10 cm
m、厚さ20 μm

ガス拡散層は、カソード側、アノード側とも、カーボンペーパー
25 に、撥水性材料としてのポリテトラフルオロエチレン（PTFE）
を含浸させて形成し、10 cm × 10 cm、厚さ200 μmとした。

但し、セル1～5において、カソード側ガス拡散層の空気入口側
領域（全体面積に対して50%）において、表1に示すように、チ
25 ャネル対向部24AではPTFE含有量Xaを（4、6、10、1
7、25 wt%とし、リブ対向部24BにおけるPTFE含有量Xb
(30 wt%)と比べて小さく設定した。

カソード側ガス拡散層の空気出口側領域では、PTFE含有量は
一律に30 wt%に設定した。

アノード側ガス拡散層の P T F E 含有量は、いずれも全体領域で一律に 3 0 wt% に設定した。

比較例のセル 6, 7 では、カソード側ガス拡散層のチャネル対向部 2 4 A におけるフッ素樹脂含有量を 3 0, 4 0 wt% の各値に設定した以外は、上記セル 1 ~ 5 と同様に作製した。

以下に各セルの具体的な作製方法を示す。

カソード側ガス拡散層：カーボンペーパー（厚み 2 0 0 μ m）を用意し、このカーボンペーパーを P T F E 分散溶液に浸漬して、3 8 0 °C で 1 時間焼成した。この時点での P T F E 含有量は全体領域で一律的に所定の値（セル 1 では 4 wt%、セル 2 では 6 wt%、セル 3 では 1 0 wt%、セル 4 では 1 7 wt%、セル 5 では 2 5 wt%）となるように調整した。

そして、空気入口側領域のチャネル対向部 2 4 A に相当する領域にだけマスキングシートを置いて、その上から P T F E 分散溶液をスプレー塗布した後、再度 3 8 0 °C で 1 時間焼成した。

このとき、空気入口側領域のチャネル対向部 2 4 A 以外の領域で P T F E 含有量が 3 0 wt% となるように、P T F E 分散溶液塗布量を調整した。

このようにして、セル 1 ~ 5 用のカソード側ガス拡散層を作製した。

セル 6 用のカソード側ガス拡散層は、カーボンペーパーを P T F E 分散溶液に浸漬した後に 3 8 0 °C で 1 時間焼成することによって作製した。

セル 7 用のカソード側ガス拡散層は、セル 6 用のカソード側ガス拡散層と同じものに、更に、空気入口側領域のチャネル対向部 2 4 A に相当する部分だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から P T F E 分散溶液をスプレー塗布した後、再度 3 8 0 °C で 1 時間焼成した。

このとき、PTFE分散溶液塗布量は、空気入口側領域のチャネル対向部におけるPTFE含有量が40wt%となるように調整した。

以下の工程は、セル1～7において共通である。

5 アノード側のガス拡散層：カーボンペーパー（厚み200μm）を用意し、PTFE分散溶液に浸漬した後、380℃で1時間焼成した。これにより、PTFE含有量が30wt%のアノード側のガス拡散層を作製した。

10 カソード触媒層およびアノード触媒層の形成：Pt担持カーボン粉末、Nafion溶液、PTFE分散溶液を、Pt担持カーボン粉末とNafionとPTFEの重量比が100:20:10となる割合で混合してスラリーを作製した。このスラリーを、前記各ガス拡散層に厚さ20μmで塗布することによって、カソード触媒層およびアノード触媒層を形成した。

15 上記のように触媒層を形成したガス拡散層（アノード及びカソード）を、固体高分子膜を介挿して重ね、150℃-60secの条件でホットプレスすることによってセル1～7を作製した。

（セル電圧測定試験）

20 このように作製した実施例及び比較例の各セル1～7を、以下の条件で運転し、セル電圧（電圧が安定したときの値）を測定した。

電流密度：0.5A/cm²

セル内運転温度：80℃

燃料ガス：純水素

酸化剤ガス：空気

25 燃料ガス利用率：70%

酸化剤ガス利用率：40%

図4は、各セルのセル電圧測定値を示すものであって、空気入口側領域におけるリブ対向部24BのPTFE含有量Xbに対するチ

チャネル対向部 24A における PTFE 含有量 X_a の比率 (X_a/X_b) と、セル電圧 (mV) との関係を示す特性図である。

考察：

図 4 では、セル 2～5 は、セル 6, 7 と比べて、高いセル電圧が得られており、比率 (X_a/X_b) を 0.2～0.8 の範囲に設定するのが好ましいことがわかる。

これは、セル 2～5 では、カソード側ガス拡散層において、比率 (X_a/X_b) を 0.2～0.8 の範囲に設定しているので、チャネル対向部 24A の保水性がリブ対向部 24B の保水性と比べて適度に大きくなっている。それによって、チャネル対向部 24A とリブ対向部 24B とで固体高分子膜及び電極層の湿潤が均一化されているのに対して、セル 6, 7 においては、このような湿潤性均一化の作用がないためと考えられる。

なお、セル 2～5 と比べてセル 1 では、セル電圧がかなり低い。これは、セル 1 では、空気入口側領域におけるチャネル対向部 24A のフッ素樹脂含有量がかなり少ないので、この部分に水が滞留してガス拡散性が極端に損なわれたためと考えられる。

また、別の実験によって、保水性を調整する範囲について調べたところ、カソード側のガス拡散層の空気入口側端部から出口側にかけて 10 wt% 未満であると十分な撥水性が得られず、逆に 90 wt% を超えるとガス拡散性が極端に失われる影響があることが明らかになっている。

このことから、カソード側のガス拡散層の空気入口側におけるフッ素樹脂含有量は 10～90 wt% の範囲が望ましいと考えられる。

〔実施の形態 2〕

図 5 は、本実施形態にかかるセルユニットを、空気入口側の範囲において、厚み方向に切断した断面を模式的に示す図である。

本実施形態のセルユニット 110 は、電極／高分子膜接合体 12

0におけるカソード側ガス拡散層124の構成が上記実施形態1のカソード側ガス拡散層24と異なっている以外は、実施の形態1の図1に示すセルユニット10と同様の構成である。

本実施形態のカソード側ガス拡散層124においては、カーボンペーパーをはじめとする導電性多孔質材料に、ガスの拡散性を確保するため撥水性材料が添加されたものを用いている点は上記ガス拡散層24と同様であるが、カソード触媒層22と対向する側には、カーボン粒子に撥水性材料が混合添加された混合物が塗布されることによって、保水性調整層125が形成されている。

この保水性調整層125は、カーボン粒子が混合されているため保水性に優れており、カソード触媒層22に隣接してこの保水性調整層125が存在するため、固体高分子膜21及びカソード触媒層22は安定して湿潤状態に保たれることになる。

本実施形態では、空気入口側の領域20Aにおいて、この保水性調整層125に保水性調整を施している。即ち、空気入口側の領域20Aにおいて、酸化剤チャネル65と対向する部分（チャネル対向部125A）では、リブ66と対向する部分（リブ対向部125B）と比べて保水性が高くなるように調整している。

このような保水性調整層125における保水性の調整は、具体的には、チャネル対向部125Aには比表面積が大きいカーボン粒子を用い、リブ対向部125Bには比表面積が小さいカーボン粒子を用いることによってなされている。

一般的に、比表面積が大きいカーボン粒子ほどその保水性（一定重量のカーボン粉末に含ませることができる水の量）が高いので、上記のように保水性調整層125に用いるカーボン材料の比表面積を規定することによって、チャネル対向部125Aではリブ対向部125Bと比べてより保水性を高くすることができる。

このように保水性が調整された保水性調整層125をカソード側

ガス拡散層124が備えることによって、上記実施の形態1で説明したのと同様の効果を奏する。即ち、酸化剤チャネル65に対向する部分とリブ66に対向する部分とで、固体高分子膜及び触媒層の湿潤度を均一化することができる。

5 なお、保水性調整層125におけるカーボン材料の比表面積を変えて、ガス透過性はあまり影響されないので、保水性調整層125における反応領域全体でガス透過性の均一性を保つことは可能である。

〔実施例2〕

10 上記実施の形態2に基づき、カソード側ガス拡散層以外は上記実施例1と同様の仕様で、実施例のセル8～10を作製すると共に、比較例としてセル11、12を作製し、セル電圧測定試験を行った。

【表2】

15		カーボンの比表面積(m ² /g)		カーボン比 表面積の比率 Ya/Yb
		チャネル 対向部Ya	リブ対向部 Yb	
20	セル8	1270	254	5.00
	セル9	800	254	3.15
	セル10	343	254	1.35
	セル11	254	254	1.00
	セル12	56	254	0.22

25 セル8～10のカソード側ガス拡散層は、カーボンペーパーに、撥水性材料としてPTFEを含浸させて形成し(PTFE含有量は一律的に30wt%)、10cm×10cm、厚さ200μmとしたものの表面に、カーボン粉末とPTFEからなる混合物が塗布され

て保水性調整層が形成された構成であるが、当該保水性調整層の空気入口側領域（全体面積に対して 50 %）において、表 2 に示す通り、チャネル対向部 125A には、リブ対向部 125B と比べて、比表面積の大きいカーボン粉末を用いて保水性を高くした。

5 なお、保水性調整層を形成する混合物中の PTFE 含有量は 30 wt% で共通に設定した。

また、表 2 に示すように、比較例のセル 11 では、保水性調整層において、チャネル対向部 125A とリブ対向部 125B とに用いるカーボン粉末の比表面積を同等に設定し、比較例のセル 12 では、10 保水性調整層 125 において、チャネル対向部 125A では、リブ対向部 125B と比べて用いるカーボン粉末の比表面積を小さく設定することによって保水性を低くした。そして、それ以外は、上記セル 8 ~ 10 と同様に作製した。

以下に各セルの具体的な作製方法を示す。

15 カソード側ガス拡散層：カーボンペーパー（厚み 200 μm ）を用意し、このカーボンペーパーを PTFE 分散溶液に浸漬して、380 °C で 1 時間焼成した。この時点での PTFE 含有量は全体領域で一律に 30 wt% となるよう調整した。

20 比表面積 254 m^2/g のカーボン粉末と PTFE 分散溶液とを混合して混合物スラリ（固形分中の PTFE 含有量は 30 wt%）を作製した。そして、空気入口側領域におけるチャネル対向部 124A に相当する領域にだけマスキングシートを置いて、その上から、この混合分散液を塗布した。

25 次に、比表面積が 1270、800、343、254、56 m^2/g の各値を有するカーボン粉末と PTFE 分散溶液とを混合した混合物スラリ（固形分中の PTFE 含有量は 30 wt%）を作製した。そして、空気入口側領域におけるチャネル対向部 125A に相当する領域だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から、こ

の各混合物スラリを塗布した後、380℃で1時間焼成した。

このようにして、セル8～12用のカソード側ガス拡散層を作製した。そして、作製したカソード側ガス拡散層を用いて、上記実施例1と同様にしてセル8～12を作製した。

5 (セル電圧測定試験)

このように作製した実施例及び比較例の各セルについて、上記実施例1におけるセル電圧測定試験と同じ条件でセル電圧を測定した。

図6は、各セルのセル電圧測定値を示すものであって、空気入口側領域において、リブ対向部125Aに用いたカーボン粉末の比表面積 Y_b に対するチャネル対向部125Bに用いたカーボン粉末の比表面積 Y_a の比率(Y_a/Y_b)と、セル電圧(mV)との関係を示す特性図である。

考察：

図6から、セル8～10は、セル11、12と比べて、高いセル電圧が得られていることがわかる。

これは、セル8～10では、保水性調整層125の空気入口側領域において、上記比表面積の比率 Y_a/Y_b を1.35～5の範囲に設定することによって、チャネル対向部125Aの保水性がリブ対向部125Bの保水性に対して適度に大きくなっている。それによって、セル8～10においては、チャネル対向部125Aとリブ対向部125Bとで固体高分子膜及び電極層の湿潤が均一化されているのに対して、セル11、12においては、このような湿潤性均一化の作用がないためと考えられる。

25 [実施の形態3]

本実施形態のセルユニットは、実施の形態2のセルユニット110と同様の構成であるが、保水性調整層125における保水性の調整方法が異なっている。

即ち、上記実施の形態2では、保水性調整層125におけるチャネル対向部124Aとリブ対向部125Bとの保水性を調整するのに、チャネル対向部125Aとリブ対向部125Bとで用いるカーボン粉末の比表面積を調整することによって行ったが、本実施形態5では、カーボン粉末に対する撥水性材料の添加量を、チャネル対向部125Aではリブ対向部125Bよりも少なく設定することによって行う。

これによっても、上記実施の形態1で説明したのと同様、酸化剤チャネル65と対向する部分で固体高分子膜やカソード触媒層が乾燥しやすいという傾向が抑えられ、電極／高分子膜接合体120における酸化剤チャネル65に対向する部分とリブ66と対向する部分との間で湿潤性が均一化されることになる。

〔実施例3〕

上記実施の形態3に基づき、カソード側ガス拡散層124以外は上記実施例1と同様の仕様で、実施例のセル13～17を作製すると共に、比較例としてセル18、19を作製し、セル電圧測定試験を行った。

20

25

【表3】

	保水性調整層中のPTFE含有量		PTFE含有量の比率 Za/Zb	
	チャネル 対向部Za	リブ対向部 Zb		
5	セル13	4	30	0.13
10	セル14	6	30	0.20
15	セル15	10	30	0.33
20	セル16	17	30	0.57
25	セル17	25	30	0.83
	セル18	30	30	1.00
	セル19	40	30	1.33

セル13～17のカソード側ガス拡散層は、カーボンペーパーに、
撥水性材料としてのPTFEを含浸させて形成し(PTFE含有量
は一律的に30wt%)、10cm×10cm、厚さ200μmとした
ものの表面に、カーボン粉末とPTFE樹脂からなる混合物が塗
布されて保水性調整層が形成された構成であるが、当該保水性調整
層の空気入口側領域(全体面積に対して50%)において、表3に
示すように、チャネル対向部125Aではリブ対向部125Bと比
べてPTFE樹脂の含有量を小さく設定して保水性を高くした。

また、表3に示すように、比較例のセル18では、保水性調整層
125において、チャネル対向部125Aとリブ対向部125Bと
でPTFE含有量を同等に設定し、比較例のセル19では、保水性
調整層125において、チャネル対向部125Aでは、リブ対向部
125Bと比べてPTFE含有量を大きく設定することによって、
保水性を低く設定した。そして、それ以外は、上記セル13～17
と同様に作製した。

以下に各セルの具体的な作製方法を示す。

カソード側ガス拡散層：カーボンペーパー（厚み $200\mu\text{m}$ ）を用意し、このカーボンペーパーを P T F E 分散溶液に浸漬して、380°Cで1時間焼成した。この時点での P T F E 含有量は全体領域で一律的に 30 wt% となるよう調整した。

比表面積 $254\text{m}^2/\text{g}$ のカーボン粉末と P T F E 分散溶液とを混合して混合物スラリ（固体分中の P T F E 含有量は 30 wt%）を作製した。そして、空気入口側領域におけるチャネル対向部 125 A に相当する領域にだけマスキングシートを置いて、その上から、この混合分散液を塗布した。

次に、比表面積 $254\text{m}^2/\text{g}$ のカーボン粉末と P T F E 分散溶液とを混合し、固体分中の P T F E 含有量を 4、6、10、17、25、30、40 wt% の各値に設定した混合物スラリを作製した。そして、空気入口側領域におけるチャネル対向部 125 A に相当する部分だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から、上記各混合物スラリをそれぞれ塗布した後、380°Cで1時間焼成した。

このようにして、セル 13～19 用のカソード側ガス拡散層を作製した。そして、作製したカソード側ガス拡散層を用いて、上記実施例 1 と同様にしてセル 13～19 を作製した。

20 (セル電圧測定試験)

このように作製した実施例及び比較例の各セルについて、上記実施例 1 におけるセル電圧測定試験と同じ条件でセル電圧を測定した。

図 7 は、各セルのセル電圧測定値を示すものであって、保水性調整層 125 の空気入口側領域において、リブ対向部 125 に含まれる P T F E 含有率 Z b に対するチャネル対向部 125 B に含まれる P T F E 含有率 Z a の比率 ($Z a/Z b$) と、セル電圧 (mV) との関係を示す特性図である。

考察：

図7から、セル14～17は、セル18、19と比べて、高いセル電圧が得られており、保水性調整層125において、チャネル対向部125Aにおけるフッ素樹脂含有量をリブ対向部125Bにおけるフッ素樹脂含有量に対して0.2～0.8の範囲内に設定することが好ましいことがわかる。

これは、セル14～17では、保水性調整層125の空気入口側領域において、チャネル対向部125AにおけるPTFE含有量をリブ対向部125BにおけるPTFE含有量に対して0.2～0.8の範囲内に設定することによって、チャネル対向部125Aの保水性がリブ対向部125Bの保水性に対して適度に大きくなっている。それによって、チャネル対向部125Aとリブ対向部125Bとで固体高分子膜及び電極層の湿潤が均一化されているのに対して、セル18、19においては、このような湿潤性均一化の作用がないためと考えられる。

なお、セル14～17と比べてセル13では、セル電圧がかなり低い。これは、セル13では、空気入口側領域におけるチャネル対向部125Aで保水性調整層中のPTFE樹脂含有量がかなり少ないので、この部分に水が滞留してガス拡散性が極端に損なわれたためと考えられる。

20

〔実施の形態4〕

図8は、本実施形態にかかるセルユニットを、空気入口側の範囲において、厚み方向に切断した断面を模式的に示す図である。

本実施形態のセルユニット210は、実施の形態1の図1に示すセルユニット10と同様の構成であるが、電極／高分子膜接合体220において、カソード側ガス拡散層24とカソード触媒層22との間に、イオン交換体からなる中間保水層26が設けられており、この中間保水層26において、チャネル対向部及びリブ対向部の保

水性が調整されている点が異なっている。

本実施形態のカソード側ガス拡散層24は、カーボンペーパーをはじめとする導電性多孔質材料に、ガスの拡散性を確保するため全体に均一的に撥水性材料が添加されたものを用いる。

5 そして、このカソード側ガス拡散層24におけるカソード触媒層22側の表面上で、空気入口側の領域20Aには、イオン交換樹脂が塗布されることによって中間保水層26が積層されている。

この中間保水層26は、イオン交換樹脂で形成されているため保水性に優れています。カソード触媒層22に隣接してこの中間保水層26が存在するため、固体高分子膜21及びカソード触媒層22は安定して湿潤状態に保たれることになる。

また、酸化剤チャネル65と対向する部分（チャネル対向部26A）では、リブ66と対向する部分（リブ対向部26B）と比べて保水性が高くなるように調整している。

15 このような中間保水層26における保水性の調整は、具体的には、チャネル対向部26Aにおいてはイオン交換樹脂の塗布量を大きくし、リブ対向部26Bにおいてはイオン交換樹脂の塗布量を小さくする（もしくは、リブ対向部26Bにはイオン交換樹脂を塗布しない。）ことによってなすことができる。

20 或は、チャネル対向部26Aにおいては、イオン交換容量が大きいイオン交換樹脂を用い、リブ対向部26Bにおいてはイオン交換容量が小さいイオン交換樹脂を用いることによってもなすことができる。

上記のようにカソード触媒層22とカソード側ガス拡散層24との間に、保水性が調整された中間保水層26を設けることによって、上記実施の形態1で説明したのと同様の効果を奏する。即ち、酸化剤チャネル65に対向する部分とリブ66に対向する部分とで、固体高分子膜21及びカソード触媒層22の湿潤度を均一化すること

ができる。

なお、中間保水層26を設ける空気入口側の領域20Aの面積については、実施の形態1で説明したのと同様の理由で、ガス拡散層24の全体面積に対して10%以上90%以下の範囲内に設定することが好ましい。

〔実施例4〕

上記実施の形態2に基づき、カソード側ガス拡散層の表面上にイオン交換樹脂を塗布して中間保水層を形成すること以外は上記実施例1と同様の仕様で、実施例のセル20, 21を作製し、セル電圧測定試験を行った。

セル20, 21のカソード側ガス拡散層は、カーボンペーパーに、撥水性材料としてPTFEを含浸させ、380°Cで1時間焼成することによって形成し(PTFE含有量は一律的に30wt%)、10cm×10cm、厚さ200μmとした。

セル20においては、このカソード側ガス拡散層の表面に、空気入口側領域(全体面積に対して50%)において、チャネル対向部26Aに相当する部分だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から、イオン交換容量1.0meq./gのイオン交換樹脂(アルコール溶液)を塗布し、80°Cで20分間乾燥させてアルコールを除去した。この時、チャネル対向部26Aにおけるイオン交換樹脂の塗布量は0.06mg/cm²とした。

これによってカソード側ガス拡散層の上に形成される中間保水層26は、チャネル対向部26Aにだけイオン交換樹脂が塗布され、リブ対向部26Bにはイオン交換樹脂が塗布されていない。従って、この中間保水層26において、チャネル対向部26Aではリブ対向部26Bよりも保水性が高くなる。

セル21においては、先ず、上記セル20と同様にして、カソード側ガス拡散層の表面の空気入口側領域(全体面積に対して50%)

において、チャネル対向部 26A に相当する部分に、イオン交換容量 $1.0 \text{ meq.} / \text{g}$ のイオン交換樹脂を塗布量 0.06 mg/cm^2 で塗布した。次に、カソード側ガス拡散層の表面の空気入口側領域（全体面積に対して 50%）において、リブ対向部 26B に相当する部分だけ開口したマスキングシートを置いて、その上から、イオン交換容量 $0.91 \text{ meq.} / \text{g}$ のイオン交換樹脂（アルコール溶液）を塗布し、 80°C で 20 分間乾燥させてアルコールを除去した。リブ対向部 26B におけるイオン交換樹脂の塗布量も 0.06 mg/cm^2 とした。

これによってカソード側ガス拡散層の上に形成される中間保水層 26 は、チャネル対向部 26A にイオン交換容量の比較的大きいイオン交換樹脂が塗布され、リブ対向部 26B にはイオン交換容量の比較的小さいイオン交換樹脂が塗布されている。従って、この中間保水層 26 において、チャネル対向部 26A ではリブ対向部 26B よりも保水性が高くなる。

（比較例）

また、比較例として、カソード側ガス拡散層の表面の空気入口側領域（全体面積に対して 50%）において、イオン交換容量 $1.0 \text{ meq.} / \text{g}$ のイオン交換樹脂を均一的に塗布して中間保水層を形成し、それ以外は、上記セル 20, 21 と同様にしてセル 22~29 を作製した。

ここで、セル 22~29 におけるイオン交換樹脂の塗布量は、表 4 に示す値に設定した。

【表4】

	イオン交換樹脂塗布量・イオン交換容量	
	チャネル対向部	リブ対向部
セル20	0.06mg/cm ² 1.0meq./g	0
セル21	0.06mg/cm ² 1.0meq./g	0.06mg/cm ² 0.91meq./g
セル22	0.01mg/cm ²	1.0meq./g
セル23	0.02mg/cm ²	1.0meq./g
セル24	0.04mg/cm ²	1.0meq./g
セル25	0.06mg/cm ²	1.0meq./g
セル26	0.08mg/cm ²	1.0meq./g
セル27	0.1mg/cm ²	1.0meq./g
セル28	0.12mg/cm ²	1.0meq./g
セル29	0.15mg/cm ²	1.0meq./g
セル30		0

5

10

15

なお、セル30は、イオン交換樹脂を塗布しない（中間保水層を形成しない）以外は、上記セル20、21と同様にして作製したものである。

（セル電圧測定試験）

20 このように作製した実施例及び比較例の各セルについて、次の条件でセル電圧を測定した。

電流密度：0.5 A/cm²

セル内運転温度：80℃

燃料ガス：純水素

25 酸化剤ガス：空気

燃料ガス利用率：70%

酸化剤ガス利用率：40%

ガス加湿温度：燃料側は80℃、酸化剤側は無加湿

その結果、実施例のセル20ではセル電圧測定値が632mV、セル21ではセル電圧測定値が643mVであった。

比較例のセル25ではセル電圧測定値が634mVであった。

図9は、比較例の各セルのセル電圧測定値を示すものである。

5 考察：

図9から、イオン交換樹脂の塗布量が0.02～0.12mg/cm²であるセル23～28は、イオン交換樹脂の塗布量が0.01mg/cm²以下であるセル22、30あるいはイオン交換樹脂の塗布量が0.15mg/cm²であるセル29と比べて高いセル電圧が得られていることがわかる。

これは、酸化剤側を無加湿で運転した場合、中間保水層がないと電極／高分子膜接合体から水分がたくさん蒸発することによって高いセル電圧を得にくいのに対して、適度な保水力を持つ中間保水層を設けると水分の蒸発が抑えられるためセル電圧が得られることを示している。

また、中間保水層のイオン交換樹脂の塗布量が大きすぎても高いセル電圧が得られにくいことも示しているが、これは、イオン交換樹脂自体は非導電性なので、イオン交換樹脂の塗布量が大きすぎると、カソード触媒層とガス拡散層との間の電気抵抗が大きくなるためと考えられる。

次に、実施例のセル20と比較例のセル25とを比べると、セル20のイオン交換樹脂の総塗布量はセル25の半分程度であるが、同等のセル電圧が得られている。また、実施例のセル20と比較例のセル23やセル24と比べると、イオン交換樹脂の総塗布量は同等であるが、セル20の方がセル23やセル24よりも高いセル電圧が得られている。

これは、実施例のセル24では、空気入口側領域において、中間保水層のチャネル対向部の保水性がリブ対向部の保水性に対して適

度に大きくなっており、それによって、チャネル対向部とリブ対向部とで固体高分子膜及び電極層の湿潤が均一化されているのに対し、比較例のセルにおいては、このような湿潤性均一化の作用がないためと考えられる。

5

〔実施の形態5〕

図10は、本実施形態にかかるセルユニットを、空気入口側の範囲において、厚み方向に切断した断面を模式的に示す図である。

本実施形態のセルユニット310では、電極／高分子膜接合体210におけるカソード側ガス拡散層324には保水性の調整を施さず、カソード触媒層322に保水性の調整を施している以外は、実施の形態1の図1に示すセルユニット10と同様の構成である。

本実施形態のカソード触媒層322は、上記カソード触媒層22と同様に白金系触媒担持カーボンによって形成されているが、酸化剤チャネル65と対向するチャネル対向部322Aでは、リブ66と対向するリブ対向部322Bと比べて保水性を高く設定している。

このカソード触媒層322における保水性の調整は、具体的には、チャネル対向部322Aには触媒担持体として比表面積が大きいカーボン粒子（保水性の大きいカーボン粒子）を用い、リブ対向部322Bには比表面積が小さいカーボン粒子（保水性の小さいカーボン粒子）を用いることによってなされている。

そして、このように保水性が調整されたカソード触媒層322を備えることによっても、上記実施の形態1で説明したのと同様の効果を奏する。

即ち、酸化剤チャネル65に対向する部分とリブ66に対向する部分とで、固体高分子膜及び触媒層の湿潤度を均一化することができる。

〔実施例5〕

上記実施の形態5に基づき、カソード触媒層322及びカソード側ガス拡散層324以外は上記実施例1と同様の仕様で、実施例5のセルを作製した。

本実施例のカソード側ガス拡散層324は、カーボンペーパーに、
5 摥水性材料としてのPTFEを含浸させて形成し(PTFE含有量は均一的に30wt%)、10cm×10cm、厚さ200μmとしたものを用いた。

またカソード触媒層322は、何れの領域でも、Pt担持カーボン粉末とNafionとPTFEの重量比は100:20:10で共通であるが、チャネル対向部322Aに担持体として用いられているカーボン粉末は比表面積が800m²/gであるのに対して、リブ対向部322Bに担持体として用いられているカーボン粉末は比表面積が254m²/gである。

以下にセルの具体的な作製方法を示す。

15 比表面積254m²/gのカーボン粉末に白金担持させてPt担持カーボン粉末を作製し、このPt担持カーボン粉末とNafion溶液とPTFEとを、Pt担持カーボン粉末とNafionとPTFEの重量比が100:20:10となるように混合し、混合スラリAを作製した。

20 また、比表面積800m²/gのカーボン粉末に白金担持させてPt担持カーボン粉末を作製し、このPt担持カーボン粉末とNafion溶液とPTFEとを、Pt担持カーボン粉末とNafionとPTFEの重量比が100:20:10となるように混合し、混合スラリBを作製した。

25 そして、摥水性材料を含浸させたカーボンペーパー(カソード側ガス拡散層)に対して、空気入口側領域におけるチャネル対向部322Aに相当する領域だけ開口したマスキングシートを置いて、その上から、混合スラリBを塗布した。

次に、空気入口側領域におけるリブ対向部322Bに相当する部分だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から、混合物スラリAを塗布することによって、カソード触媒層322を形成した。

5 そして、このように作製したカソード側ガス拡散層にカソード触媒層を形成したものを用いて、上記実施例1と同様にしてセルを作製した。

10 このように作製した実施例のセルと、カソード触媒層のチャネル対向部322Aとリブ対向部322Bとで用いるカーボン比表面積の調整を施していない比較例セルとを、上記実施例1と同様にしてセル電圧測定試験を行ったところ、実施例セルの方が高いセル電圧が得られた。

〔実施の形態6〕

15 本実施形態のセルユニットは、実施の形態5のセルユニット310と同様の構成であるが、カソード触媒層322における保水性の調整方法が異なっている。

20 即ち、上記実施の形態5では、カソード触媒層322におけるチャネル対向部322Aとリブ対向部322Bとの保水性を調整をするのに、チャネル対向部322Aとリブ対向部322Bとで担持体として用いるカーボン材料の比表面積を調整することによって行ったが、本実施形態では、カソード触媒層322に添加するイオン交換体の添加量を、チャネル対向部322Aではリブ対向部322Bよりも大きくすることによって行う。

25 これによっても、酸化剤チャネル65が対向する部分で固体高分子膜やカソード触媒層が乾燥しやすいという傾向が抑えられ、電極／高分子膜接合体320における酸化剤チャネル65に対向する部分とリブ66と対向する部分との間で湿潤性が均一化されることに

なる。

〔実施例 6〕

上記実施の形態 6 に基づき、カソード触媒層 322 以外は上記実施例 5 と同様の仕様でセルを作製した。

5 本実施例のカソード触媒層 322 は、何れの領域でも、担持体として用いられているカーボン粉末の比表面積は $254\text{ m}^2/\text{g}$ と共通であるが、チャネル対向部 322A においては、Pt 担持カーボン粉末と Nafion と PTFE の重量比が 100 : 40 : 10 であるのに対して、リブ対向部 322B では、Pt 担持カーボン粉末と Nafion と PTFE の重量比が 100 : 20 : 10 である。

10 以下にセルの具体的な作製方法を示す。

上記実施例 5 で説明したのと同様の混合スラリ A を作製した。

また、比表面積 $254\text{ m}^2/\text{g}$ のカーボン粉末に白金担持させて Pt 担持カーボン粉末を作製し、この Pt 担持カーボン粉末と Nafion 溶液と PTFE とを、Pt 担持カーボン粉末と Nafion と PTFE の重量比が 100 : 40 : 10 となるように混合し、混合スラリ C を作製した。

20 そして、撥水性材料を含浸させたカーボンペーパー（カソード側ガス拡散層）に対して、空気入口側領域におけるチャネル対向部 322A に相当する領域だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から、混合スラリ C を塗布した。

25 次に、空気入口側領域におけるリブ対向部 322B に相当する部分だけを開口したマスキングシートを置いて、その上から、混合物スラリ A を塗布することによって、カソード触媒層 322 を形成した。

そして、このように作製したカソード側ガス拡散層にカソード触媒層を形成したものを用いて、上記実施例 1 と同様にしてセルを作製した。

5 このように作製した実施例のセルと、カソード触媒層のチャネル対向部 322A とリブ対向部 322B とで Nafion 量の調整を施していない比較例のセルとを、上記実施例 1 と同様にしてセル電圧測定試験を行ったところ、実施例のセルの方が高いセル電圧が得られた。

〔変形例など〕

10 * 上記実施の形態 2, 3 では、保水性調整層 125 を、カソード側ガス拡散層 124 のカソード触媒層 22 と対向する側にのみ設けた例を示したが、保水性調整層 125 を設ける位置はこれに限らず、ガス流路側に設けても、或いはガス拡散層の厚み方向全域に設けてもよい。

15 * 実施の形態 1 と同様、実施の形態 2 ~ 6 においても、湿潤性を均一化する効果を得るために、カソード側ガス拡散層或はカソード触媒層、もしくは中間保水層において、酸化剤の入口側端部から出口側に向かう一定割合（好ましくはカソード側ガス拡散層或はカソード触媒層における酸化剤の入口側端部から出口側端部までの全領域の面積に対して 10% ~ 90% の領域）に対して、チャネル対向部とリブ対向部との間で上記のように保水性調整を行うことが好ましい。

20 * 上記各実施の形態においては、カソード側ガス拡散層やカソード触媒層において、酸化剤ガス入口側の端部から一定範囲の領域において保水性の調整を施す例を示したが、このように保水性の調整を施す範囲は、酸化剤ガス入口側に寄っていれば、酸化剤ガス入口側端部から少し離れたところに施しても、同様の効果を奏する。

25 * 上記実施の形態 1 ~ 6 に示したカソード側ガス拡散層或はカソード触媒層に対する保水性調整方法は、その 2 つ以上を組み合わせて用いることも可能である。

*実施の形態2においては、カソード側ガス拡散層だけに、カーボン粉末と撥水性材料を混合した混合物からなる保水性調整層を形成する例を示したが、アノード側ガス拡散層にもカーボン粉末と撥水性材料を混合した混合物からなる保水性調整層を形成してもよく、
5 固体高分子膜に対するより高い保湿効果が期待できる。

*上記各実施の形態では、酸化剤ガスと燃料ガスの流れが平行なセルユニットに基づいて説明したが、セルユニットの構成はこれに限
定されず、例えばカソード側とアノード側の各セパレータ板のチャ
ネルが直交する構成のセルユニットであってもよい。

10 *上記実施の形態で説明したチャネル対向部とリブ対向部との間に
における保水性の調整に加えて更に、空気入口側領域20Aにおいて、
空気出口側領域20Bと比べてガス拡散層の撥水性が高くなるよう、
撥水性材料の含有量を調整することも可能である。

15 このような空気入口側領域及び出口側領域の調整を組み合わせれば、空気入口側領域20Aで、空気出口側領域20Bと比べて水分
蒸発が抑制されるので、空気入口側と出口側との間における固体高
分子膜及び触媒層の湿潤性も均一化できる。

20 *上記実施の形態においては、燃料ガスを用いて発電する一般的な
固体高分子型燃料電池を例にとって説明したが、本発明は、燃料ガ
スの代りにメタノールをアノード側に直接供給しながら発電するD
MFCに適用することも可能である。

産業上の利用可能性

25 本発明は、固体高分子膜にアノード及びカソードを配してなるセ
ルを備えた燃料電池を用いた発電機、発電システム、コジェネレー
ーションシステム、電気自動車などに利用できる。

請求の範囲

1. 固体高分子膜の一方側にカソード触媒層、他方側にアノード触媒層が配されているセルを、前記アノード触媒層に対向して燃料が流通する燃料流路が形成された第1プレートと、前記カソード触媒層に対向して酸化剤が流通する酸化剤流路及びリブが形成された第2プレートとで挟持して構成された燃料電池であって、

前記カソード触媒層と第2プレートとの間にガス拡散層が介挿され、

10 当該ガス拡散層及びカソード触媒層の少なくとも一方は、

前記酸化剤流路と対向する領域で、前記リブと対向する領域と比べて保水性が高くなるよう構成されている。

2. 請求項1記載の燃料電池において、

15 前記ガス拡散層及びカソード触媒層の少なくとも一方は、

酸化剤入口付近の領域において、

前記酸化剤流路と対向する領域で、前記リブと対向する領域と比べて保水性が高くなるよう構成されている。

20 3. 請求項1記載の燃料電池において、

前記ガス拡散層及びカソード触媒層の少なくとも一方は、

酸化剤の入口側端部から出口側に向かう一定の領域において、

前記リブと対向する領域と比べて保水性が高くなるよう構成されている。

25 4. 請求項3記載の燃料電池において、
前記一定の領域の面積は、
前記ガス拡散層における酸化剤の入口側端部から出口側端部まで

の全領域の面積に対して 10 % 以上 90 % 以下である。

5. 請求項 1 ~ 4 のいずれか記載の燃料電池において、
前記ガス拡散層は、

5 導電性基材に撥水性材料が含まれたもので形成され、
前記酸化剤流路と対向する領域で、前記リブと対向する領域と比
べて、撥水性材料含有量を小さく設定されている。

6. 請求項 5 記載の燃料電池において、
10 前記ガス拡散層は、

前記酸化剤流路と対向する領域における撥水性材料含有量が、前
記リブと対向する領域の撥水性材料含有量に対して 0.2 倍以上 0.
8 倍以下の範囲内に設定されている。

15 7. 請求項 1 ~ 4 のいずれか記載の燃料電池において、
前記ガス拡散層には、

カーボン粉末を含有する混合物が充填されることによって保水性
調整層が形成され、

20 当該保水性調整層は、前記酸化剤流路と対向する領域で、前記リ
ブと対向する領域と比べて保水性が高くなるよう調整されている。

8. 請求項 7 記載の燃料電池において、
前記ガス拡散層では、

前記酸化剤流路と対向する領域に用いられるカーボン粉末の保水
性が、前記リブと対向する領域に用いられるカーボン粉末の保水性
25 より大きい。

9. 請求項 7 記載の燃料電池において、

前記ガス拡散層では、

前記酸化剤流路と対向する領域に用いられるカーボン粉末の比表面積が、前記リブと対向する領域に用いられるカーボン粉末の比表面積より大きい。

5

10. 請求項7記載の燃料電池において、

前記保水性調整層は、カーボン粉末と撥水性材料との混合物が充填されることによって形成され、

10 前記酸化剤流路と対向する領域に充填される混合物中の撥水性材料含有量が、前記リブと対向する領域に充填される混合物中の撥水性材料含有量に対して0.2倍以上0.8倍以下の範囲内に設定されている。

11. 請求項1記載の燃料電池において、

15 前記カソード触媒層は、

触媒が担持されたカーボン粉末にイオン交換体が添加された混合物からなり、

前記リブと対向する領域に用いられるカーボン粉末の比表面積は、酸化剤出口側に用いられるカーボン粉末の比表面積より大きい。

20

12. 請求項1の記載の燃料電池において、

前記カソード触媒層は、

触媒が担持されたカーボン粉末にイオン交換体が添加された混合物からなり、

25 前記酸化剤流路と対向する領域では、前記リブと対向する領域と比べてイオン交換体の添加量が大きい。

13. 固体高分子膜の一方側にカソード触媒層、他方側にアノ

ード触媒層が配されているセルを、前記アノード触媒層に対向して燃料が流通する燃料流路が形成された第1プレートと、前記カソード触媒層に対向して酸化剤が流通する酸化剤流路及びリブが形成された第2プレートとで挟持して構成された燃料電池であって、

5 前記カソード触媒層と第2プレートとの間には、

ガス拡散層と、当該ガス拡散層よりカソード触媒層側に位置するイオン交換体を含有する中間保水層とが介挿され、

当該中間保水層は、前記酸化剤流路と対向する領域で、前記リブと対向する領域と比べて保水性が高くなるよう調整されている。

10

14. 請求項13記載の燃料電池において、

前記中間保水層は、

酸化剤の入口側端部から出口側に向かう一定の領域に設けられている。

15

15. 請求項14記載の燃料電池において、

前記一定の領域の面積は、

前記ガス拡散層における酸化剤の入口側端部から出口側端部までの全領域の面積に対して10%以上90%以下である。

20

16. 請求項13～15のいずれか記載の燃料電池において、

前記中間保水層では、

前記酸化剤流路と対向する領域に、前記リブと対向する領域と比べて多くのイオン交換体が含まれている。

25

17. 請求項13～15のいずれか記載の燃料電池において、

前記中間保水層では、

前記リブと対向する領域に含まれているイオン交換体よりも、前

記酸化剤流路と対向する領域に含まれているイオン交換体の方が、イオン交換容量が大きい。

18. 請求項13～15のいずれか記載の燃料電池において、
5 前記イオン交換体は、

パーフルオロスルホン酸、ポリスチレンスルホン酸、ポリベンズイミダゾールスルホン酸、ポリエーテルケトンスルホン酸から選択されたものである。

10 19. 請求項13～15のいずれか記載の燃料電池において、
前記酸化剤流路と対向する領域では、
前記中間保水層中に含まれるイオン交換体の量が、 $0.02\text{ mg}/\text{cm}^2$ 以上 $0.12\text{ mg}/\text{cm}^2$ 以下の範囲内である。

要 約 書

5 固体高分子膜にアノード及びカソードを配してなるセルを備えた
燃料電池において、固体高分子膜及び電極触媒層の湿潤性を均一化
することよって、安定して優れた特性で発電できるものを提供する
ことを目的とする。

そのため、カソード触媒層 22 とカソード側セパレータ板 60 と
に挟まれたガス拡散層 24 において、酸化剤ガス（空気）の入口側
から一定の範囲では、酸化剤チャネル 65 と対向する領域 24A で
は、リブ 66 と対向する領域 24B と比べて保水性が高くなるよう
10 に調整されている。

このガス拡散層 24 における保水性の調整は、チャネル対向部 2
4A における単位面積当たりの撥水性材料の含有量を、リブ対向部
24B における単位面積当たりの撥水性材料の含有量より小さく設
定することによって行う。

図1

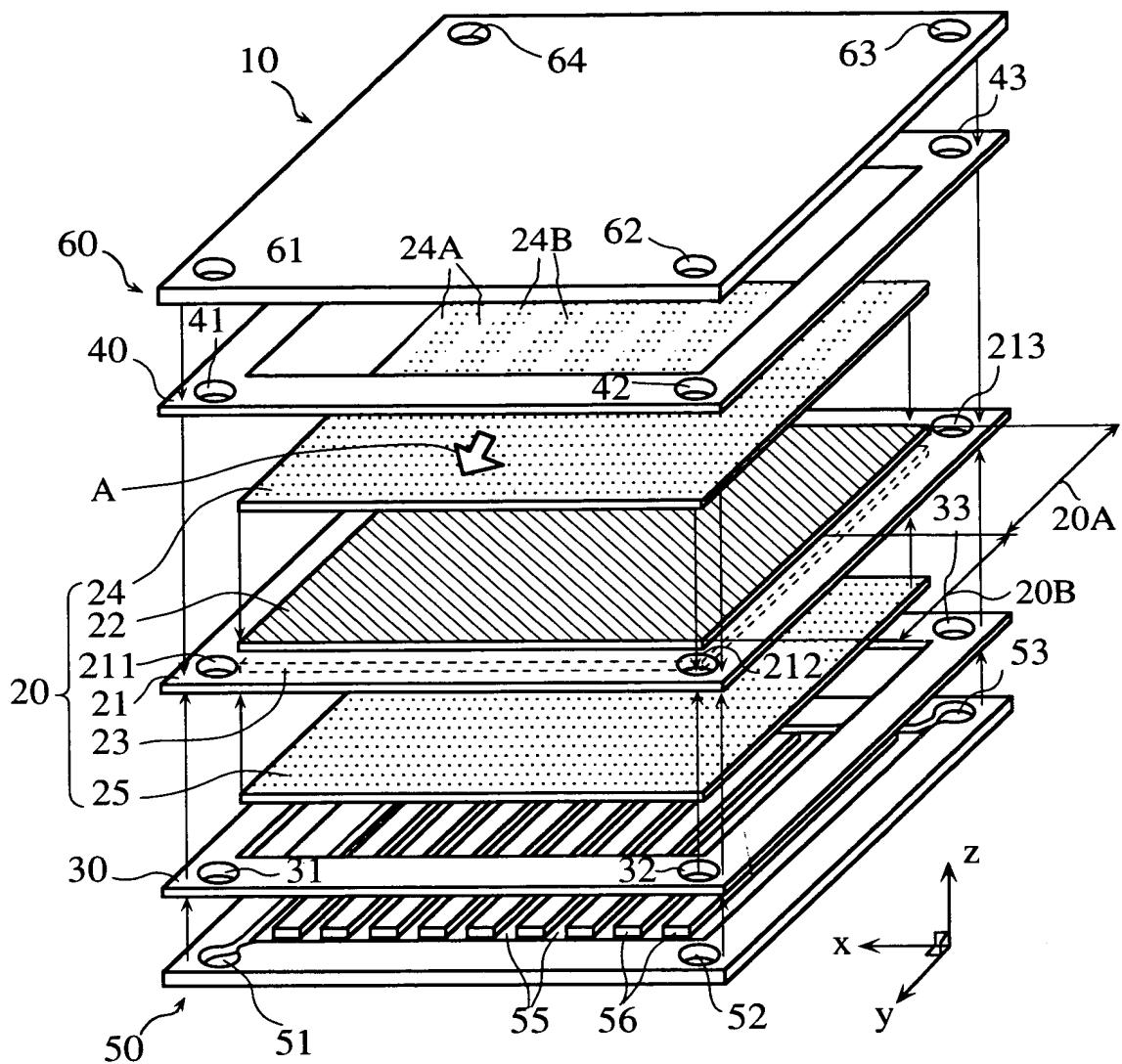


図2

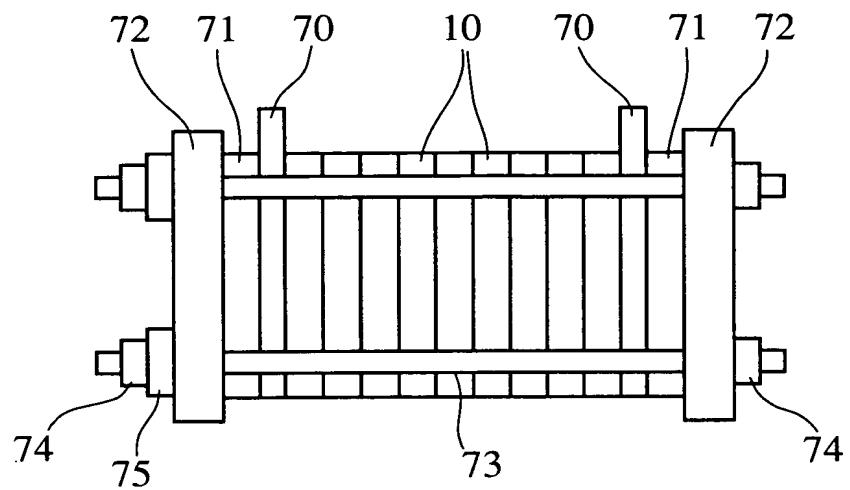


図3

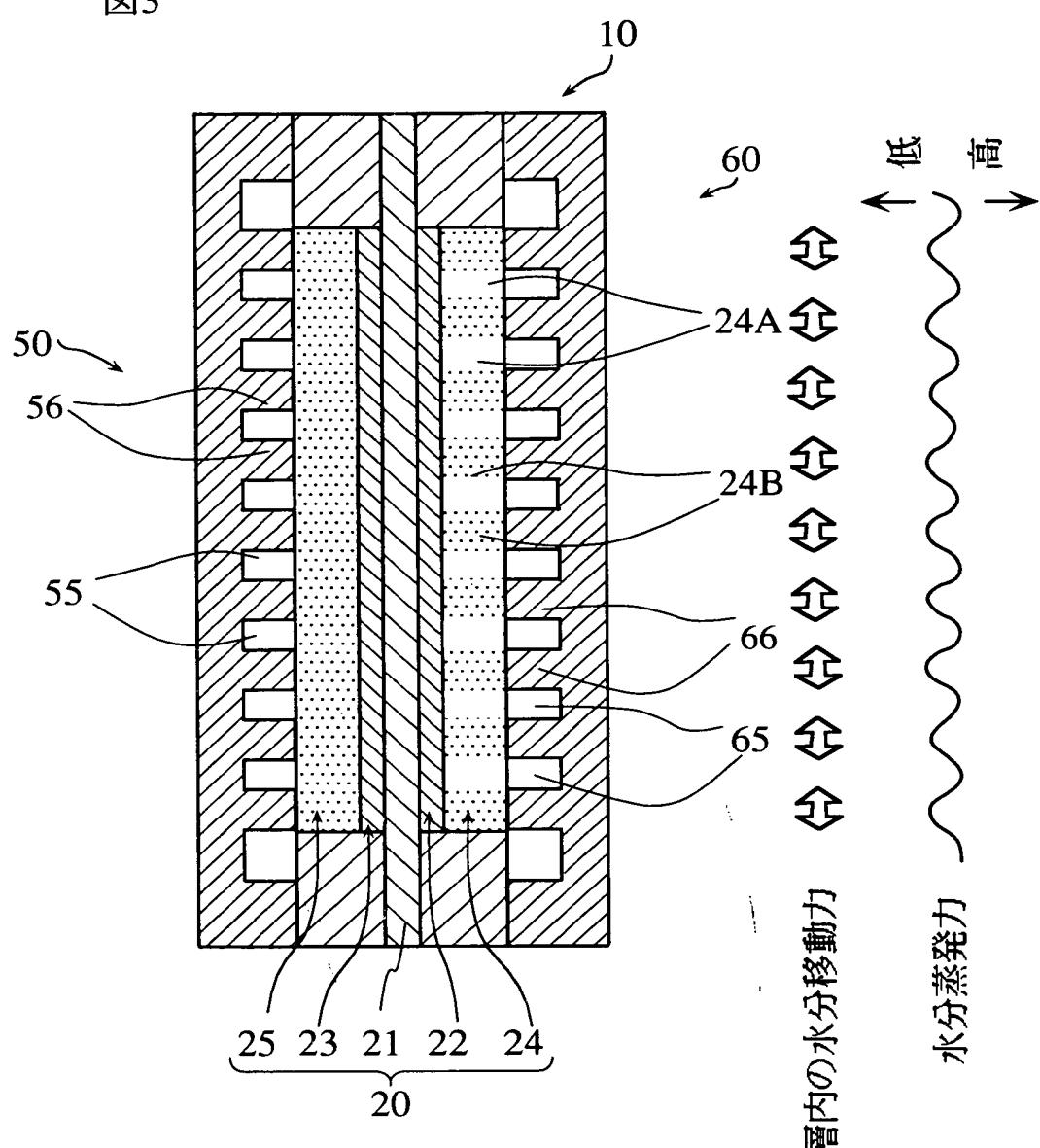


図4

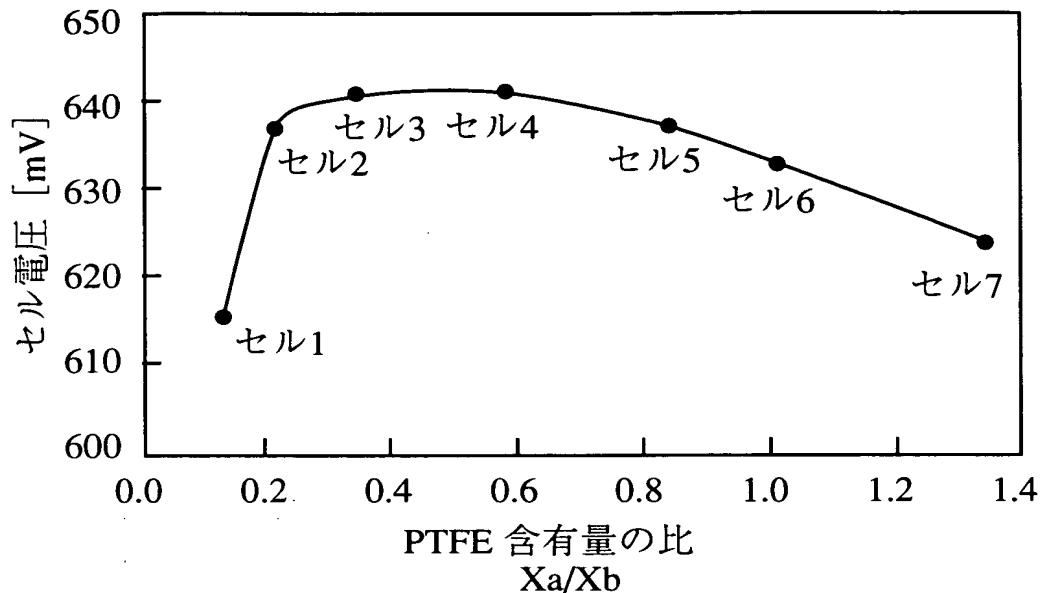


図5

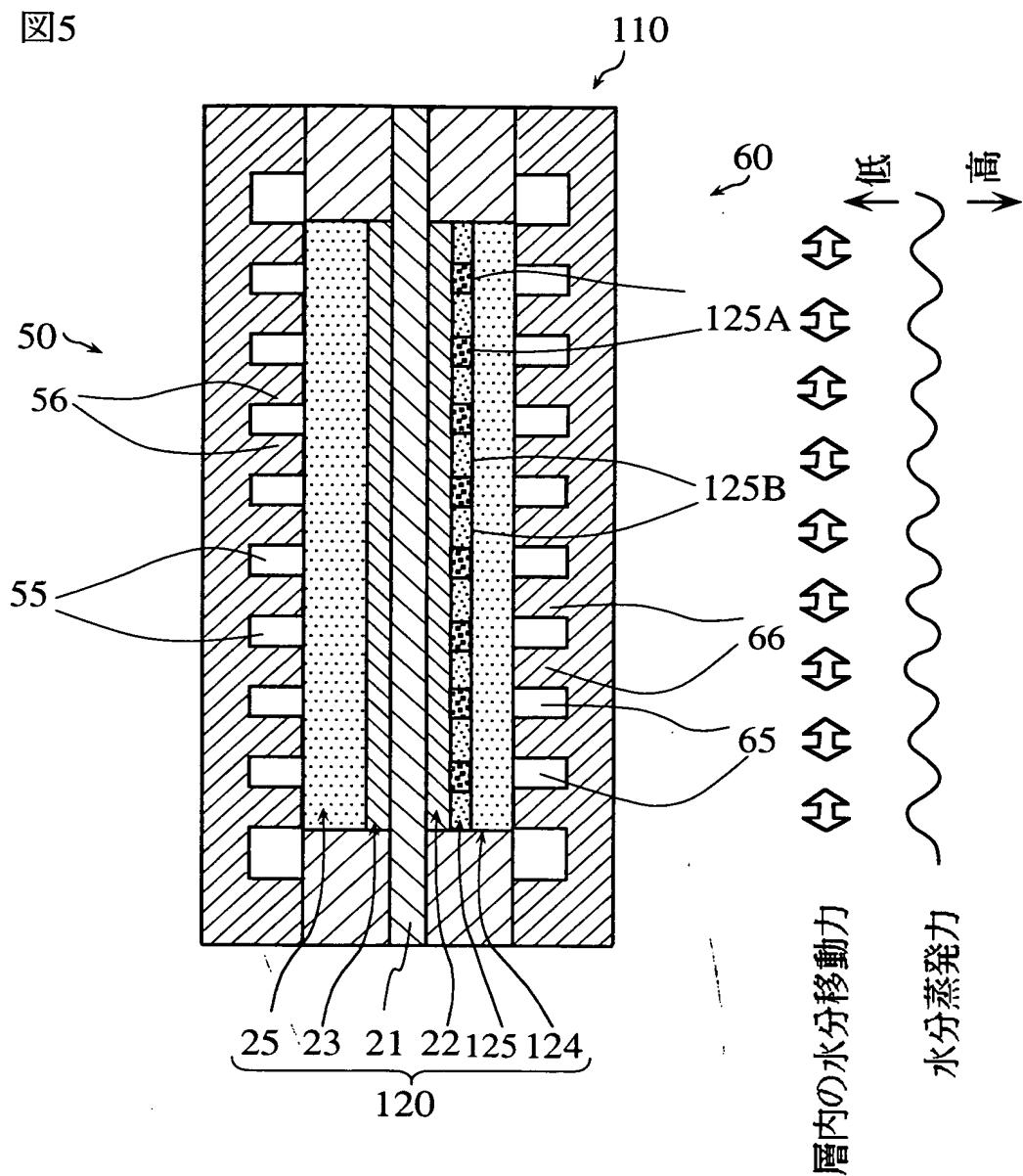


図6

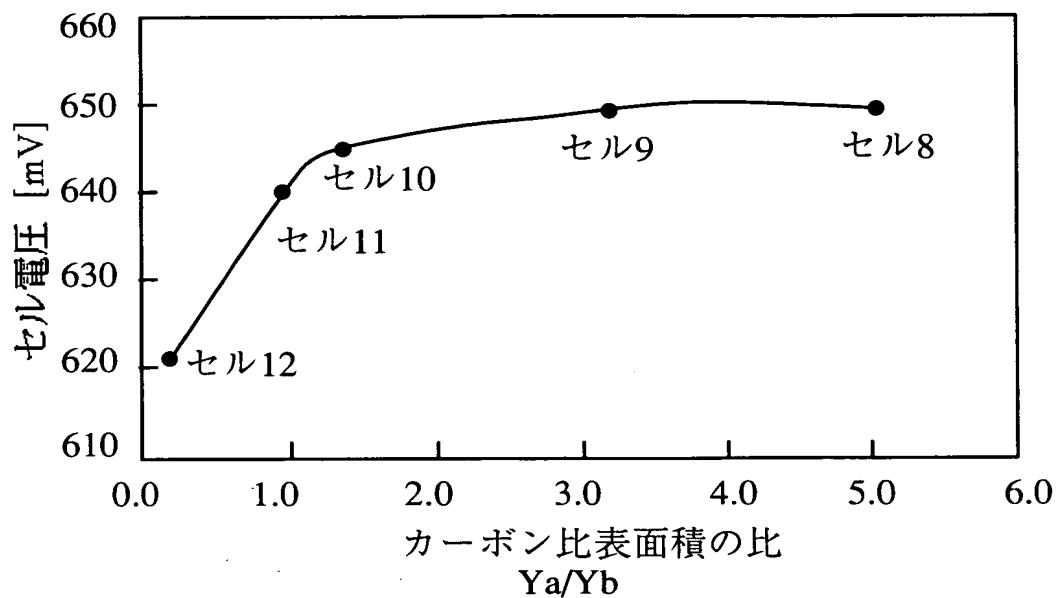


図7

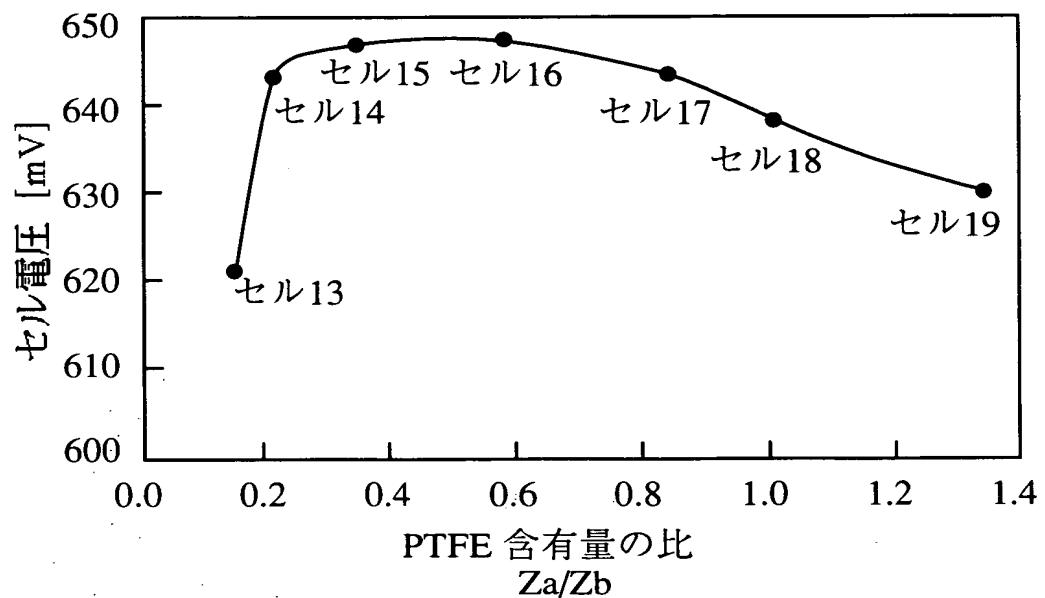


図8

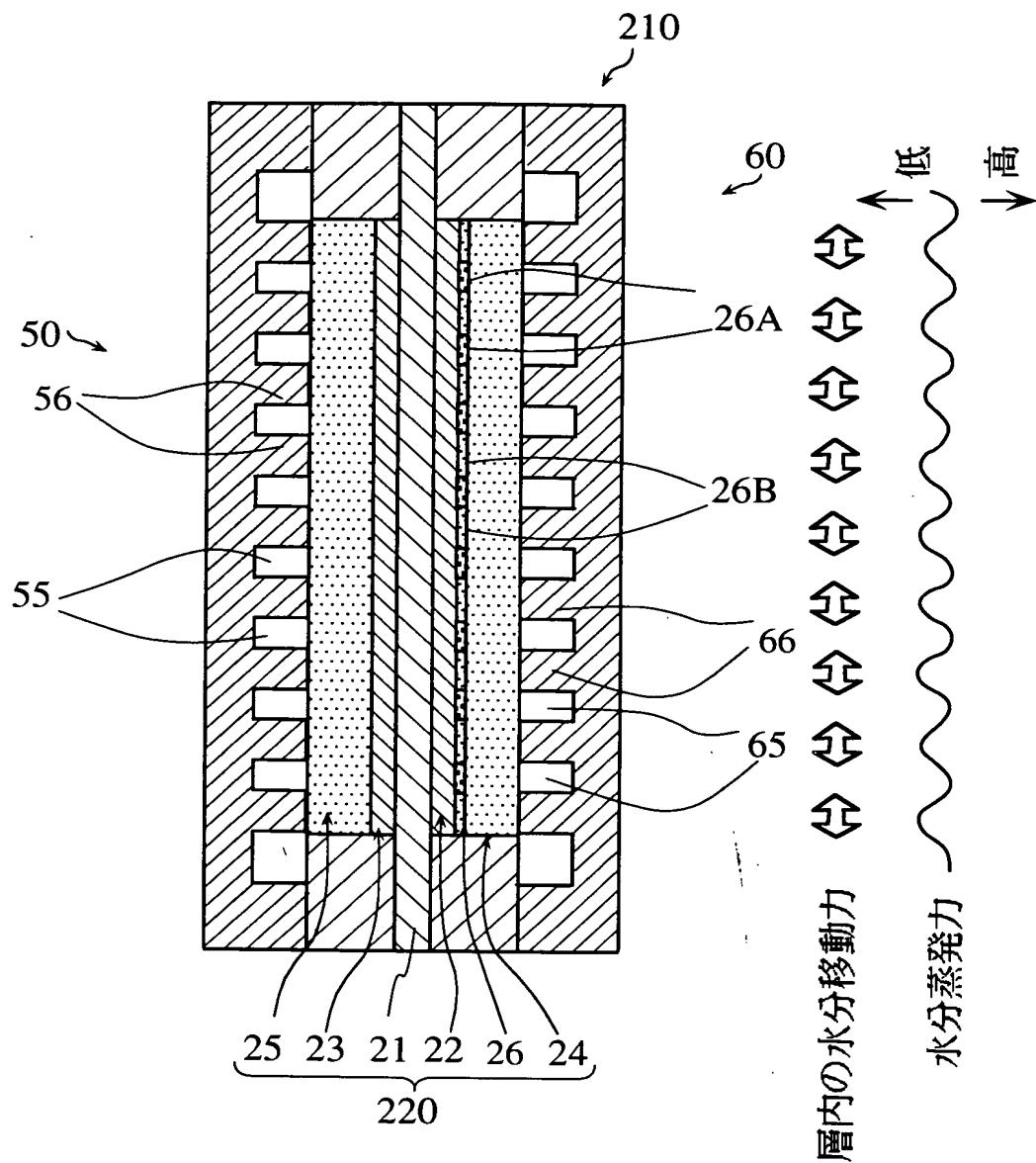


図9

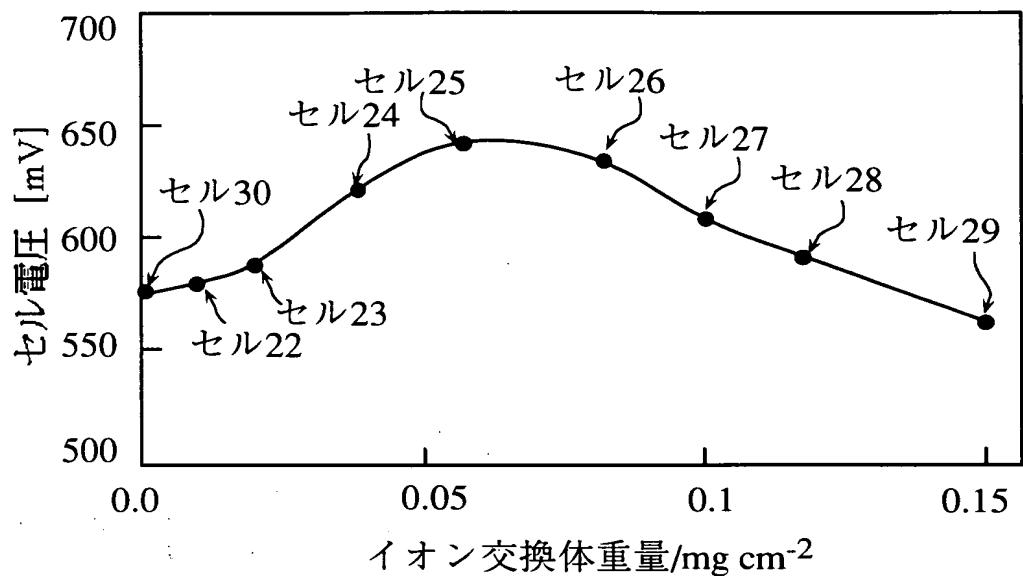


図10

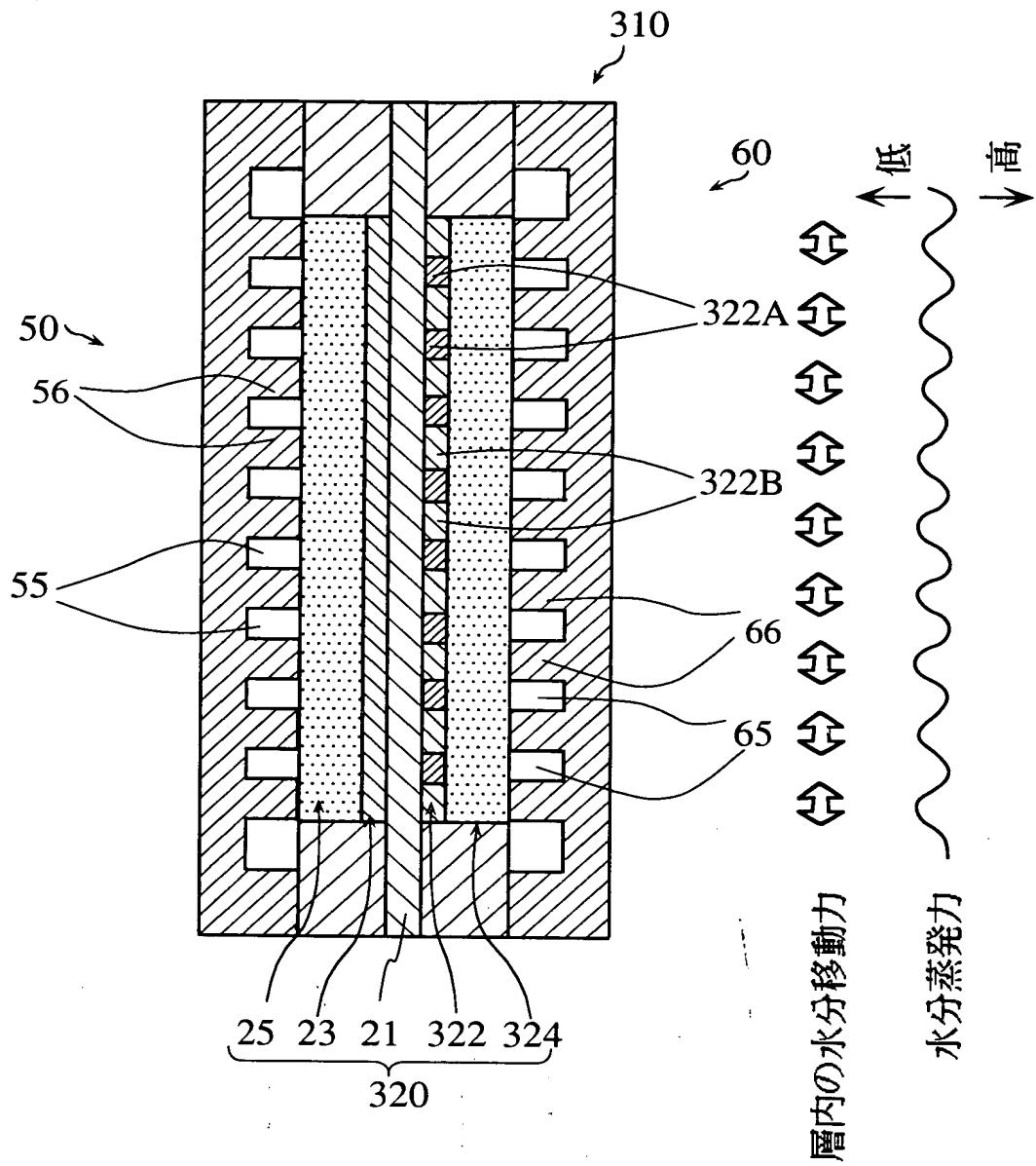
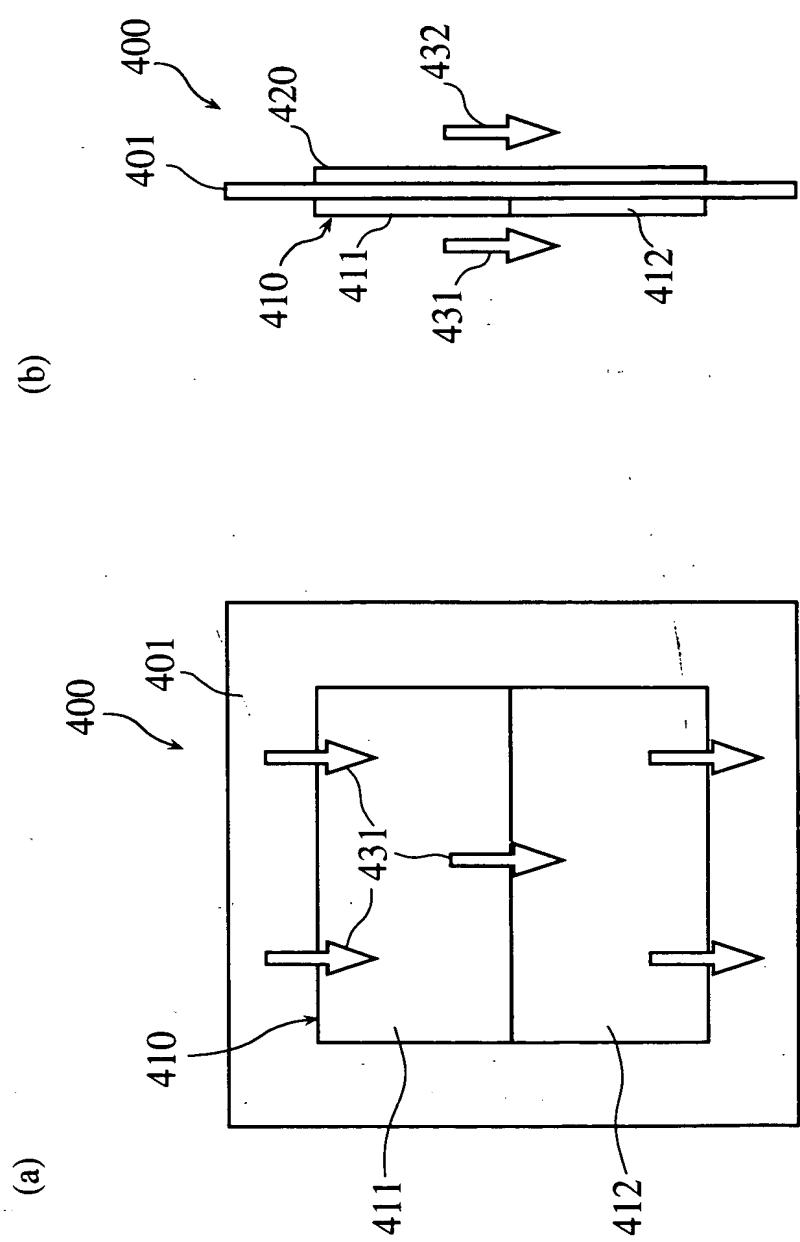


図11



特許協力条約

PCT

国際調査報告

REC'D 23 NOV 2001

WIPO

PCT

(法8条、法施行規則第40、41条)
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 F1010416W000	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP01/06964	国際出願日 (日.月.年) 13.08.01	優先日 (日.月.年) 11.08.00
出願人(氏名又は名称) 株本 浩揮		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。
 この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、スクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。
 この国際出願に含まれる書面による配列表

この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. 発明の單一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は 出願人が提出したものを承認する。

次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は

出願人が提出したものを承認する。

第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 3 図とする。 出願人が示したとおりである。

なし

出願人は図を示さなかった。

本図は発明の特徴を一層よく表している。

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' H01M 8/04, H01M 8/02, H01M 8/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' H01M 8/04, H01M 8/02, H01M 8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2001年

日本国登録実用新案公報 1994-2001年

日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 3-182052 A(三菱重工業株式会社)8.8月.1991(08.08.91), 特許請求の範囲、第3頁右上欄第1行～第4頁右上欄第5行、及び、第1～7図(ファミリーなし)	1, 5～8, 10
Y		2～8, 10
A		9, 11～19
Y	JP 11-154523 A(富士電機株式会社)8.6月.1999(08.06.99), 特許請求の範囲(ファミリーなし)	2～8, 10
A		14～19
A	JP 5-41230 A(富士電機株式会社)19.2月.1993(19.02.93)(ファミリーなし)	1～12

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

06. 11. 01

国際調査報告の発送日

20.11.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

小川 進

4 X 8414



電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
A	JP 5-283094 A (株式会社東芝) 29.10月.1993 (29.10.93) (ファミリーなし)	1~12
A	JP 2000-195527 A (株式会社東芝) 14.7月.2000 (14.07.00) (ファミリーなし)	13~19
P, A	JP 2001-236976 A (三洋電機株式会社) 31.8月.2001 (31.08.01) (ファミリーなし)	2~11, 14~19

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/06964

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ H01M 8/04, H01M 8/02, H01M 8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H01M 8/04, H01M 8/02, H01M 8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 3-182052 A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 08 August, 1991 (08.08.91),	1, 5-8, 10
Y	Claims; page 3, upper right column, line 1 to page 4, upper	2-8, 10
A	right column, line 5; Figs. 1 to 7 (Family: none)	9, 11-19
Y	JP 11-154523 A (Fuji Electric Co., Ltd.), 08 June, 1999 (08.06.99),	2-8, 10
A	Claims (Family: none)	14-19
A	JP 5-41230 A (Fuji Electric Co., Ltd.), 19 February, 1993 (19.02.93) (Family: none)	1-12
A	JP 5-283094 A (Toshiba Corporation), 29 October, 1993 (29.10.93) (Family: none)	1-12
A	JP 2000-195527 A (Toshiba Corporation), 14 July, 2000 (14.07.00) (Family: none)	13-19
P, A	JP 2001-236976 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 31 August, 2001 (31.08.01) (Family: none)	2-11, 14-19

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance		
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"&"	document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search 06 November, 2001 (06.11.01)	Date of mailing of the international search report 20 November, 2001 (20.11.01)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

10/088515

JC13 Rec'd PCT/PTO 29 MAR 2002

VERIFICATION OF TRANSLATION

I, Yukiko Nakayama, translator of Fushimi-ku, Kyoto, Japan, hereby declare that I am conversant with the English and Japanese languages and am a competent translator thereof.

I further declare that to the best of my knowledge and belief the following is a true and correct translation made by me of International Application No. PCT/JP01/06964 filed on August 13, 2001.

Date: March 6, 2002

Yukiko Nakayama
Yukiko Nakayama